

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE  
—  
SERVICE  
de la PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

# BREVET D'INVENTION

P.V. n° 45.514, Rhône \* N° 1.421.033

Classif. internat. : C 01 c — G 02 b — H 03 f



Perfectionnements aux générateurs d'ammoniac, notamment pour masers. (Invention : Morton ROBINSON.)

GOUVERNEMENT DES ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE REPRÉSENTÉ PAR L'ADMINISTRATION NATIONALE DE L'AÉRONAUTIQUE ET DE L'ESPACE (NATIONAL AERONAUTICS AND SPACE ADMINISTRATION) résidant aux États-Unis d'Amérique.

Demandé le 15 janvier 1965, à 15<sup>h</sup> 10<sup>m</sup>, à Lyon.

Délivré par arrêté du 2 novembre 1965.

(*Bulletin officiel de la Propriété industrielle*, n° 50 de 1965.)

(*Demande de brevet déposée aux États-Unis d'Amérique le 24 janvier 1964, sous le n° 340.113, au nom du demandeur.*)

La présente invention a trait à un appareil propre à produire du gaz ammoniac et elle vise plus particulièrement une source d'un tel gaz qui se présente à l'état solide et qui soit susceptible d'être utilisée dans les masers à faisceau d'ammoniac et autres dispositifs similaires.

De nombreux essais ou autres opérations techniques ayant trait aux vols spatiaux exigent une extrême précision des étalons de fréquence ou autres moyens de mesure du temps. Pour fixer les idées l'on peut citer la recherche dans le domaine des phénomènes relativistes et qui nécessite que le temps soit déterminé avec une précision de l'ordre de celle assurée par le maser à faisceau d'ammoniac.

On sait que le maser est un dispositif d'amplification ou de production cohérentes d'ondes électromagnétiques par énergie d'excitation dans les systèmes résonants atomiques ou moléculaires. Un tel dispositif utilise un ensemble instable d'atomes ou de molécules, susceptible d'être stimulé par une onde électromagnétique pour rayonner son excédent d'énergie à la même fréquence et avec la même phase que l'onde stimulatrice, en assurant ainsi une amplification cohérente de celle-ci. Les masers à rayonnement moléculaire sont bien connus dans la technique. On peut trouver un exposé sur leurs principes de fonctionnement dans les articles parus dans la « Physical Review », volume 39, pages 1264 à 1274 (15 août 1955) et dans les « Proceedings of I.R.E. », volume 45, pages 291 à 316 (mars 1957).

Le premier de ces dispositifs qui ait été réalisé est le maser à gaz. Son fonctionnement exige qu'on lui fournit un débit de gaz connu et réglable. Dans les masers à ammoniac on a jusqu'ici utilisé comme source à cet effet une réserve de gaz liqué-

fié, mais en raison de la forte pression de vapeur de ce liquide (environ 9 kg/cm<sup>2</sup> à la température ambiante), il fallait enfermer celui-ci dans de lourds cylindres d'acier inoxydable équipés de manomètres compliqués. Bien qu'on connaisse diverses réalisations mécaniques qui puissent remplir le rôle précité, toutes ont l'inconvénient du poids et du risque de fonctionnement défectueux. Dans une forme d'exécution prise à titre d'exemple, le gaz ammoniac provenant du réservoir sous pression à travers des manomètres, débouche d'un petit orifice dans une enceinte à vide pour constituer un faisceau moléculaire. Celles des molécules qui se trouvent au niveau d'énergie inférieur sont déviées de l'axe de l'appareil de séparation ou de concentration par des champs électriques non-homogènes qui agissent sur leur moment dipolaire. Au contraire, les molécules se trouvant au niveau d'énergie supérieur sont guidées vers l'axe et envoyées dans une cavité résonante pour micro-ondes. Si les pertes par les parois de la cavité et par les orifices de couplage sont suffisamment faibles, ou si le nombre des molécules est suffisamment grand, il y a amplification ou oscillation. Le maser à faisceau d'ammoniac est particulièrement précieux comme étalon de fréquence ou de temps en raison du caractère pointu et constant des résonances du faisceau. Il s'avère très utile comme étalon de fréquence dans les systèmes de guidage des satellites et des missiles, où le poids constitue une considération primordiale pour décider du type de maser à employer.

Le brevet américain 3.013.218 déposé le 14 mai 1959 et délivré le 12 décembre 1961 décrit également un maser à faisceau d'ammoniac. La présente

invention a pour objet de réaliser une source originale de ce gaz, qui se présente à l'état solide et qui contribue à améliorer encore les avantages du maser comme étalon de fréquence dans un satellite ou autre. Suivant la présente invention le gaz ammoniac est emmagasiné sous une forme à partir de laquelle il puisse être dégagé lentement sous un débit contrôlé. A cet effet l'on transforme ce gaz en un composé complexe à l'aide d'un sel, savoir de chlorure d'argent. Comme ce dernier constitue un corps pur, avec une température d'équilibre et une pression déterminées, le dégagement d'ammoniac devient un phénomène prévisible et contrôlable. Cette caractéristique est précisément celle requise pour un fonctionnement optimal d'un maser.

Ainsi qu'on l'a déjà mentionné, dans un maser à faisceau d'ammoniac de type classique la quantité de ce gaz présente dans l'appareil est réglée par une source extérieure qui comprend en principe une bouteille d'ammoniac liquéfié sous pression avec les vannes, manomètres, pompes, raccords et autres accessoires connus dans la technique. Dans un système de guidage pour satellite ou missile, où l'engin peut continuellement basculer ou tourner sur lui-même, l'on doit éliminer une telle source d'ammoniac étant donné qu'on ne peut séparer physiquement le gaz du liquide et que pour assurer la constance du débit la phase gazeuse doit être à chaque instant au contact du mécanisme de réglage de ce débit. Au contraire le composé ammoniacal solide suivant l'invention évite cette difficulté car on peut le séparer de sa vapeur en l'entourant simplement d'un tamis possédant des ouvertures plus petites que la dimension de particule du solide.

Comme on peut prévoir de façon précise le mécanisme de décomposition du sel complexe que constitue le chlorure d'argent mono-ammoniacal, il est possible d'utiliser le sel en question, conformément à l'invention, pour éviter les inconvénients des dispositifs antérieurs. La technique qui en découle est automatique en ce sens qu'elle est basée sur un taux de réaction chimique qui reste fixe.

L'invention vise donc à établir un appareil et des moyens permettant d'emmageriner le gaz ammoniac sous une forme à partir de laquelle il puisse être aisément dégagé suivant un débit réglable.

L'invention vise encore :

A permettre d'établir un procédé et des moyens pour transformer l'ammoniac en un composé complexe de chlorure d'argent et pour le libérer ensuite sous forme gazeuse à partir de ce dernier;

A réaliser une nouvelle source de gaz ammoniac pour les masers ou dispositifs analogues;

A permettre d'établir une telle source d'ammoniac pour masers qui soit plus légère, plus sûre et moins compliquée que les sources utilisées jusqu'ici;

A permettre d'établir une nouvelle source de gaz

ammoniac pour masers ou analogues qui soit susceptible de fonctionner dans toute position, et qui puisse s'utiliser sur un engin mobile;

A réaliser une nouvelle source chimique solide de gaz ammoniac qui évite les inconvénients des procédés et dispositifs utilisés jusqu'ici dans le même but.

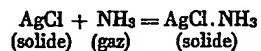
Le dessin annexé, donné à titre d'exemple, permettra de mieux comprendre l'invention, les caractéristiques qu'elle présente et les avantages qu'elle est susceptible de procurer :

La figure unique de ce dessin représente en coupe un appareil génératrice d'ammoniac suivant l'invention utilisé pour l'alimentation d'un maser.

Le sel complexe de chlorure d'argent monoammoniacal, indiqué en 1 sur le dessin, est préparé dans une sphère de cuivre revêtue de verre. La sphère elle-même comprend le revêtement de verre 2 et la chemise de cuivre 3. On l'appellera ci-après le réservoir. On peut lui faire comporter une garniture extérieure isolante 10, de nature appropriée, ainsi que le comprendra tout homme de l'art. Cette sphère ou réservoir possède un débouché 4 par l'intermédiaire duquel on peut la remplir de sel et qui sert d'autre part de sortie au gaz ammoniac. Le débouché 4 peut comporter un tamis 5 à mailles plus fines que la dimension granulométrique du sel 1 en vue d'empêcher que des particules de celui-ci ne soient entraînées dans la canalisation de liaison 6 et dans les autres parties du système. Le réservoir est entouré d'un élément chauffant électrique 7 et d'un fil thermo-détecteur 8 de tout type convenable. Le fil 8 forme l'une des branches d'un pont de Wheatstone. Le circuit de ce pont commande, à la façon connue, l'amenée d'énergie à l'élément chauffant de manière à permettre de maintenir la température constante à + 0,04 °C près. Un câble de liaison 9 relie l'élément 7 et le fil 8 à un appareil thermostatique extérieur 11 qui renferme le pont précité et la source électrique.

La canalisation 6 est reliée à un tube 12 par l'intermédiaire d'un robinet d'arrêt 13. Le tube 12 est à son tour relié d'une part à une dérivation capillaire 14, d'autre part à un second robinet 15, l'un et l'autre aboutissant à un autre tube 16 de sorte que le robinet 15 forme by-pass pour la dérivation 14. Un raccord étanche 17 permet de fixer l'appareil sus-décrit à un accessoire ou de l'en démonter. Au cours de la préparation du sel 1 on peut relier l'appareil à une source de gaz ammoniac, celui-ci se fixant sur le chlorure d'argent pour former le sel complexe  $AgCl.NH_3$ . Il est bien connu dans la technique que de nombreux sels, lorsqu'on les met en présence d'ammoniac anhydre à de basses températures, donnent lieu à la formation de composés renfermant plusieurs molécules d'ammoniac. Lorsqu'on échauffe les sels complexes ainsi obtenus, leur ammoniac se dégage avec un débit qui dépend

de la température. Dans la mise en œuvre de la présente invention on utilise comme sel de départ le chlorure d'argent et on lui ajoute des molécules d'ammoniac. Le chlorure d'argent mono-ammoniacal ( $\text{AgCl.NH}_3$ ) ainsi obtenu se présente sous la forme d'un corps solide constitué par combinaison du chlorure d'argent anhydre ( $\text{AgCl}$ ) avec le gaz ammoniac anhydre ( $\text{NH}_3$ ), le tout suivant la formule :



Lorsque le chlorure d'argent a été ainsi saturé d'ammoniac à près de 100 %, on ferme le robinet 13 pour isoler la source de l'atmosphère.

La dérivation capillaire 14 dont est équipé l'appareil est prévue pour assurer un débit de  $10^{17}$  molécules par seconde sous une pression déterminée d'ammoniac. On raccorde l'appareil ainsi préparé à la chambre de rayonnement 18 du maser, par l'intermédiaire du raccord étanche 17 qui se monte sur une canalisation 19 prévue en conséquence. Une fois le montage ainsi réalisé, l'on établit le vide en maintenant le robinet 13 fermé et le robinet 15 ouvert. Ce robinet 15, qui constitue by-pass par rapport à la dérivation capillaire 14, est normalement ouvert pendant le chargement de la source, mais doit être fermé avant la mise en service de l'appareil. On laisse le réservoir prendre une température pré-déterminée, qui correspond à celle calculée pour assurer la mise en œuvre de la puissance maximale; on ouvre le robinet 13 et l'on peut immédiatement obtenir un signal de maser. Le gaz s'écoule dans la chambre 18 par la canalisation 19 et la tuyère 20. La très forte résistance du passage capillaire 14 empêche toute variation sensible du débit par la tuyère 20 en suite des modifications de la température ambiante. On obtient ainsi un faisceau d'ammoniac extrêmement stable qui se maintient jusqu'à épuisement de la totalité de l'ammoniac renfermé par le réservoir.

Une molécule (ou mole) de  $\text{AgCl.NH}_3$ , pesant 161 g, peut dégager sous un débit constant de  $10^{17}$  molécules/seconde, une quantité d'ammoniac suffisante pour faire fonctionner un maser pendant 70 jours. En raison de sa faible pression de vapeur, ce corps peut être enfermé dans un récipient simple et léger, tel que le réservoir sus-décris. Cette faible valeur de la pression de vapeur que permet d'assurer le réglage de la température, ainsi que la détermination du débit par un simple tube capillaire assurent à l'appareil toutes les caractéristiques requises d'une excellente source solide pour masers à ammoniac.

Dans la description qui précède on a mentionné le chlorure d'argent mono-ammoniacal comme constituant le sel ammoniacal complexe préféré. Il est toutefois possible d'utiliser d'autres sels du même genre. Pour fixer les idées par un exemple les sels

ammoniacaux d'acide à l'état solide se dissocient aisément en donnant d'une part du gaz ammoniac, d'autre part de l'acide libre. Si l'on chauffe le complexe ammoniacal solide dans un récipient fermé, il s'établit dans ce dernier une pression d'ammoniac bien déterminée en présence de ce sel. Cette pression dépend uniquement de la température et, si l'acide ou le sel métallique n'est pas volatil, on peut l'appeler pression de dissociation à la température considérée.

La description qui précède fait bien comprendre que l'invention permet d'éviter des sources massives d'ammoniac liquide sous pression, pour le fonctionnement des masers dans les satellites et autres engins spatiaux. Dans le système suivant l'invention la pression de l'ammoniac est approximativement égale à 1/10 de la pression atmosphérique à la température ambiante et elle reste constante à la température considérée aussi longtemps que les deux phases solide et gaz sont en présence l'une de l'autre dans le réservoir. Par conséquent, le débit dans la chambre du maser reste lui-même constant jusqu'à épuisement de la totalité de l'ammoniac disponible.

Il doit d'ailleurs être entendu que la description qui précède n'a été donnée qu'à titre d'exemple et qu'elle ne limite nullement le domaine de l'invention dont on ne sortirait pas en remplaçant les détails d'exécution décrits par tous autres équivalents. D'autre part, et comme il va de soi, l'invention englobe à la fois les générateurs d'ammoniac du genre décrit et le procédé de production de ce gaz par utilisation d'un sel solide qu'ils mettent en œuvre.

#### RÉSUMÉ

I. Procédé pour alimenter en gaz ammoniac un appareil d'utilisation et plus particulièrement un maser, consistant à charger en ammoniac un composé tel qu'un acide, un sel d'ammonium ou un sel d'un autre métal proprement dit, et notamment de chlorure d'argent, à enfermer dans un réservoir le complexe ammoniacal ainsi obtenu, puis à chauffer ce réservoir pour déterminer la décomposition de ce complexe et le dégagement de l'ammoniac qu'il avait absorbé, le complexe épuisé pouvant être rechargeé dans le réservoir lui-même après refroidissement de celui-ci.

II. Dispositif générateur de gaz ammoniac, notamment pour masers, comprenant essentiellement un réservoir renfermant à l'état solide un sel d'ammonium ou un sel complexe d'un métal proprement dit et d'ammoniac et des moyens pour maintenir ce réservoir à une température déterminée pour laquelle le composé renfermé par le réservoir se décompose en libérant du gaz ammoniac sous une pression fonction de la température du réservoir, ledit dispositif pouvant en outre présenter les au-

tres caractéristiques envisagées ci-après, séparément ou en combinaison :

1° Le composé renfermé par le réservoir est constitué par du chlorure d'argent mono-ammoniacal à l'état divisé;

2° Le dispositif comporte un tamis à mailles suffisamment fines pour retenir dans le réservoir les particules du composé complexe renfermé par celui-ci, tout en laissant passer le gaz;

3° Entre le réservoir et la canalisation de sortie du gaz ammoniac est interposé un passage capillaire propre à maintenir un débit d'ammoniac constant pour une pression de dissociation déterminée;

4° Le réservoir est entouré d'un élément chauffant électrique ainsi que d'une résistance thermosensible propre à régler l'énergie fournie à cet élément en vue de maintenir la température à la valeur exacte désirée;

5° Le dispositif comporte des moyens permettant de relier le réservoir de façon étanche soit directement à une source de gaz ammoniac pour recharger le composé qu'il renferme, soit à un appareil d'utilisation de ce gaz, éventuellement à travers un passage capillaire régulateur, comme prévu sous 3°.

GOUVERNEMENT DES ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE  
REPRÉSENTÉ PAR L'ADMINISTRATION NATIONALE  
DE L'AÉRONAUTIQUE ET DE L'ESPACE  
(NATIONAL AERONAUTICS AND SPACE ADMINISTRATION)

Par procuration :

Jh. MONNIER

N° 1.421.033    Gouvernement des Etats-Unis d'Amérique    Pl. unique  
représenté par l'Administration Nationale de l'Aéronautique et de l'Espace  
(National Aeronautics and Space Administration)

